

<http://www.geojournals.cn/georev/ch/index.aspx>

柴达木盆地三湖地区第四系生物气的形成途径与运聚方式

张晓宝¹⁾ 徐自远²⁾ 段毅¹⁾ 马立元¹⁾ 孟自芳¹⁾ 周世新¹⁾ 贺鹏²⁾

1) 中国科学院兰州地质研究所气体地球化学国家重点实验室, 730000

2) 中国石油天然气总公司青海油田分公司勘探开发研究院, 甘肃敦煌, 736200

内容提要 柴达木盆地三湖(台吉乃尔湖、涩聂湖、达布逊湖)地区第四系生物气区是我国最大的生物气区。笔者系统采集了该气区21个天然气样品,测量了其组分和碳同位素组成,重点探讨了生物气形成途径和运聚方式。生物气 $\delta^{13}\text{C}_1$ 和 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ 均随深度增大而变重,显示了 CO_2 还原途径成气的特征。生物气 $\delta^{13}\text{C}_1$ 、 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ 和 δD 分布与 CO_2 还原方式形成的生物气的相应同位素值分布范围接近。在有关成因图解中这些数据主要位于 CO_2 还原途径成气范围内。生物气 CO_2 和 CH_4 之间的碳同位素分馏系数 $\alpha_c > 1.055$, 具有 CO_2 还原途径成气的特征。柴达木盆地第四纪干旱的古气候、较低的古温度、较高的沉积速率和水体中较高的硫酸盐含量使得甲烷菌的大量繁殖只能在较大的深度范围内才能实现,从而,有利于 CO_2 还原途径成气作用进行。涩北一号、涩北二号气田生物气 $\delta^{13}\text{C}_1$ 组分分布可能表明,生物气形成以后沿疏导层水平运移进入气藏,基本不存在垂向运移。该项研究对于进一步深入探讨生物气成因、形成条件,确定生物气模拟实验方式与条件,计算生物气资源量,建立成藏模式和选择天然气有利勘探区块均具有重要价值。

关键词 生物气 CO_2 还原成气途径 运聚方式 柴达木盆地

柴达木盆地台吉乃尔湖、涩聂湖、达布逊湖地区^①(三湖地区^①)第四系生物气区是我国最大的生物气区,也是西气东输工程的主力气区之一。本区生物气资源量为 $2937.6 \times 10^8 \text{m}^3$, 目前已发现5个气田(其中3个为中型气田)和一个含气构造(戴金星等, 1996)。在第四系中发现如此丰富的天然气资源,这在全世界是十分罕见的。自该气区发现以来,我国学者(戴金星等, 1993, 1996; 顾树松等, 1993; 周翥虹等, 1994; 陈英等, 1994; 戚厚发等, 1997)已在该气区生物气成因和气源方面做了大量工作,但对于生物气的成气途径研究较少。陈英等(1994)曾提及柴达木盆地生物气碳、氢同位素组成具有 CO_2 还原途径成气的特征,但尚未见到较系统的报道。目前,也没有检索到从气体地球化学角度探讨柴达木盆地生物气运聚方式的文献。笔者在该气区主要气田——涩北一号和涩北二号气田分气层组进行了系统采样,测试了其组分和碳同位素值,并结合生物气形成的地质地球化学条件,综合研究了其成气途径。

1 地质背景

柴达木盆地为我国西部中、新生代大型内陆山间盆地。生物气区位于盆地东部三湖拗陷(图1)中。该拗陷在第四纪2Ma左右的地史时期内强烈沉降,快速沉积了巨厚的咸水湖相夹沼泽相的第四系,最大厚度超过3200m,下部发育有1500m大套生气岩,其中还夹有可作为较好储层的泥质细砂岩和粉砂岩,组成自生自储的成气组合。第四系暗色泥质岩、碳质泥岩及碳质页岩是本区的气源岩。气源岩平均有机碳含量为0.3%左右,其中滨湖沼泽相碳质泥岩和碳质页岩有机碳平均为9.06%,最高可达18.99%。气源岩有机质类型以陆源腐殖型为主,含腐泥腐殖型,仅含少量混合型(戴金星等, 1996)。三湖拗陷自北向南可分为北斜坡区、中央凹陷区和南斜坡区。涩北一号和涩北二号气田位于北斜坡区内(图1)。根据涩北一号和涩北二号气田气层特征,自上而下划分了0、I、II、III、IV、V等6个气层组。

注:本文为中国科学院资源环境领域知识创新工程重大(重要方向)项目(编号 KZCX2-111)和国家自然科学基金项目(编号 49972051, 40172053)资助成果。

① 有文献称台吉乃尔湖、涩聂湖、达布逊湖地区为“柴达木盆地东部”,但与地理位置不符,故本文称为三湖地区。

收稿日期:2002-01-07;改回日期:2002-08-27;责任编辑:周健。

作者简介:张晓宝,男,1958年生。1982年毕业于长春地质学院,1991年和1998年分别在中国科学院兰州地质研究所获硕士学位和博士学位。现任中国科学院兰州地质研究所气体地球化学国家重点实验室研究员,主要从事天然气地质地球化学研究。通讯地址:730000,甘肃省兰州市东岗西路324号,中科院兰州地质研究所。

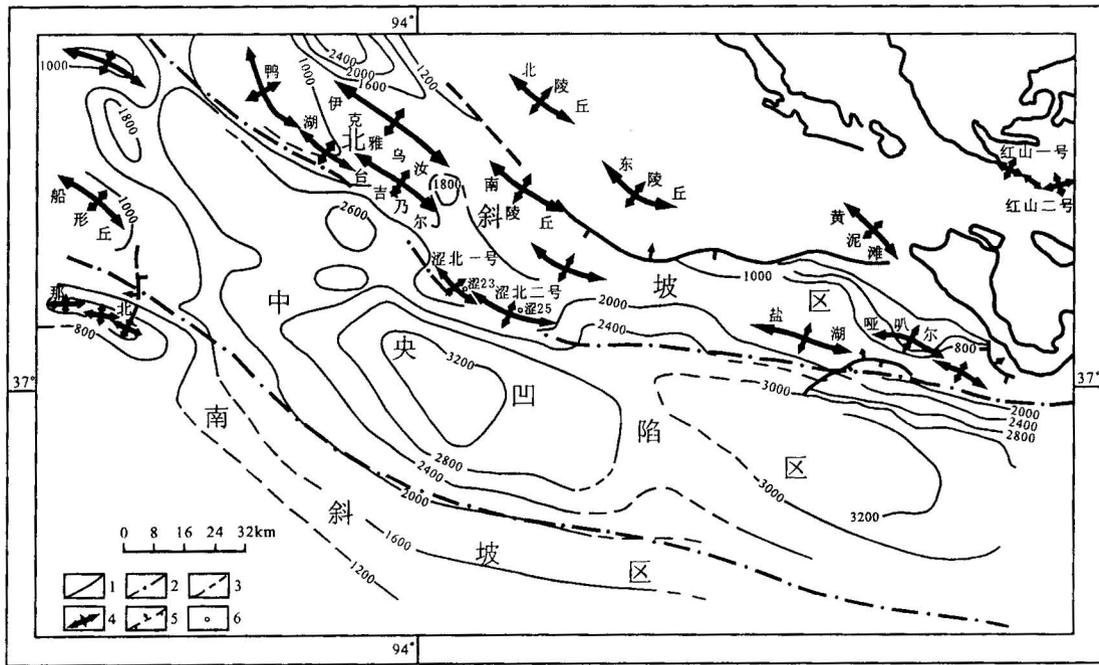


图 1 柴达木盆地三湖地区构造分区与气田分布图

Fig. 1 Tectonic divisions and distribution of gas fields in the eastern part of the Qaidam basin

1—老山界线; 2—构造分区界线; 3—第四系等厚线(m); 4—背斜圈闭; 5—逆断层; 6—井号

1—Boundary of old mountains; 2—boundary of tectonic divisions; 3—contour (m) of the Quaternary; 4—anticline trap; 5—reversal fault; 6—well number

2 样品与实验

共采集了涩北一号和涩北二号气田不同气层组的19个天然气样品和伊克雅乌汝、台吉乃尔两个含气构造的2个天然气样品(表1)。分析了21个天然气样品的化学组分和甲烷的碳同位素组成。

应用装配有火焰离子和热导检测器的气相色谱仪测定了天然气组分。对于大多数组分,检测限平均为 $0.1 \times 10^{-6} \sim 10 \times 10^{-6}$ 。主要组分的分析精度在 $\pm 5\%$ 以内。数据如实报道,未考虑痕量空气污染,也没有进行数据的标准化。测试结果见表1。

在一个与氧化铜炉相联的气相色谱仪上将甲烷制备成用于碳同位素分析的 CO_2 。 $\delta^{13}\text{C}$ 分析在 Mat-252 同位素质谱仪上完成。碳同位素组成相对于 PDB 标准报道。估计碳同位素分析误差为 $\pm 0.2\%$ 。分析结果见表1。

3 结果讨论

3.1 地球化学特征概述

$\delta^{13}\text{C}_1$ 与 C_2+ 是区分生物气最重要的指标 (Schoell, 1980; Rice et al., 1981; Whiticar et al.,

1986; Whiticar, 1989; 戴金星等, 1992, 1993; 徐永昌, 1994)。由表1可见,柴达木盆地第四系天然气 $\delta^{13}\text{C}_1$ 非常轻,分布于 $-68.2\% \sim -61.8\%$ 范围内,平均 -64.8% ; 除涩中1井 C_2+ 含量相对较高,达 3.52% 外,绝大多数样品 C_2+ 含量极低,位于 $0.06\% \sim 0.20\%$ 之间,平均 0.12% ,是典型的生物气。一般认为生物气可以伴生痕量的重烃,但一般不超过 0.5% (戴金星等, 1992, 1993),而涩中1井生物气重烃含量远远大于 0.5% ,可能有部分热成因气的混入。

3.2 成气途径

生物气的形成主要有两种途径,一种为乙酸发酵途径,另一种为 CO_2 还原途径 (Rice et al., 1981; Whiticar et al., 1986; Whiticar, 1989; Coleman et al., 1988; Schoell, 1988)。判识生物气成气途径的主要依据是其碳、氢同位素分布及其相互关系以及生物气形成的地质条件 (Whiticar et al., 1986; Whiticar, 1989; Schoell, 1980, 1988)。

3.2.1 $\delta^{13}\text{C}_1$ 和 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ 与深度的关系

图2为柴达木盆地第四系生物气 $\delta^{13}\text{C}_1$ 和 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ 与深度的关系图。由图2可见,涩北一号和涩

表1 柴达木盆地三湖地区生物气组分与碳同位素数据

Table 1 Compositions and carbon isotopes of the biogenic gases in the eastern part of the Qaidam basin

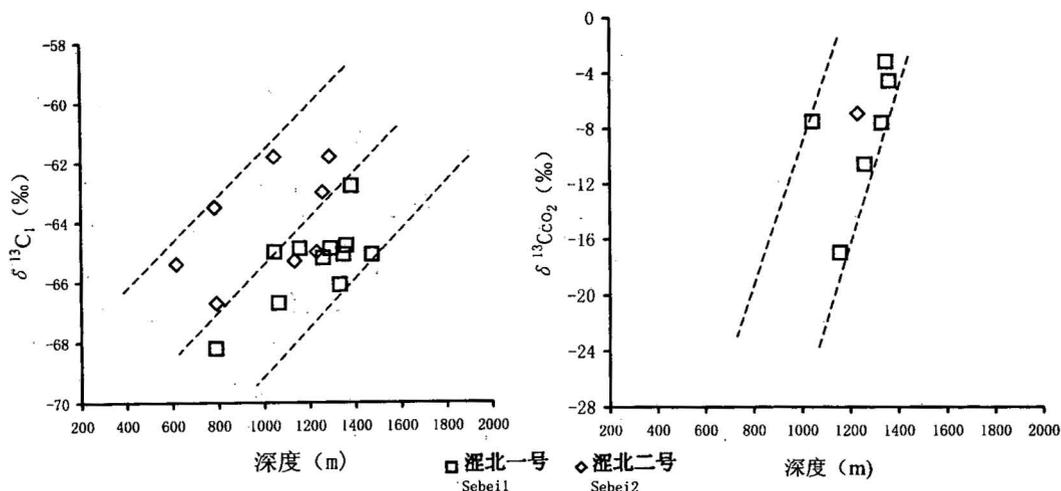
气田	井号	深度(m)	层位	C ₁ (%)	C ₂₊ (%)	O ₂ (%)	N ₂ (%)	CO (%)	CO ₂ (%)	稀有 气体	$\delta^{13}\text{C}_1$ (‰)	$\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ (‰)
涩北一号	涩23	1030.5~1061.3	I								-65.0	-7.5
	涩22	780.4~797.4	I	99.08	0.07	0.48	0.31	0.0001	0.0035	0.0588	-68.2	
	涩深13	1048.0~1082.0	I								-66.7	
	涩27	1256.2~1265.0	II	98.03	0.12	1.32	0.34	0.0001	0.1185	0.0657	-65.2	-10.6
	涩4-1	1156.9~1158.3	II								-64.9	-17.0
	涩深15	1356.2~1368.0	III	95.64	0.10	1.31	2.80	0.0001	0.0351	0.1163	-64.8	-4.6
	涩20	1276.0~1308.6	III								-64.9	
	涩3-4	1310.0~1355.0	III								-66.1	-7.6
	涩深17	1341.4~1355.8	III								-65.1	-3.2
	涩4-14	1373.8~1394.6	IV	98.22	0.10	1.23	0.38	0.0001	0.0172	0.0517	-62.8	
涩4-7	1468.3~1481.2	IV								-65.1		
涩北二号	涩28	616.0~618.0	0								-65.4	
	涩中6	782.0~791.6	I	95.41	0.09	1.36	3.00	0.0001	0.0108	0.1281	-63.5	
	涩26	790.4~794.8	I	98.08	0.09	1.36	0.42	0.0001	0.0146	0.0602	-66.7	
	涩25	1041.3~1051.5	II	98.10	0.19	1.25	0.32	0.0001	0.0855	0.0637	-61.8	
	涩21	1071.0~1078.3	II								-65.0	-6.9
	涩新深1	1132.0~1135.6	II								-65.3	
	涩中1	1284.0~1297.6	III	94.72	3.52	1.10	0.49	0.0001	0.1043	0.0608	-61.8	
涩中9	1256.4~1262.0	III								-63.0		
伊克雅乌汝	伊深1	1319.0~1322.5	N ₂ ³	98.01	0.17	0.01	1.72	0.01	0.0510	0.0264	-65.7	-13.7
台吉乃尔	台吉1	1755.0~1763.0	N ₂ ¹	47.18	0.20	6.16	43.73	1.37	0.8700	0.4870	-64.2	-9

注:表中罗马数字代表气层组。

北二号气田生物气 $\delta^{13}\text{C}_1$ 和 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ 均随深度增大而变重。据研究 (Rice et al., 1981; Schoell, 1982; Galimov et al., 1983, 1985), 在深海钻探沉积剖面中由 CO_2 还原途径形成的生物气 $\delta^{13}\text{C}_1$ 与 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ 存在相关关系, 即随着钻井深度增加, 当 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ 变重时, $\delta^{13}\text{C}_1$ 也变重; 当 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ 变轻时, $\delta^{13}\text{C}_1$ 也变轻。该关系被认为是 CO_2 还原途径形成生物气的主要证据

之一 (Rice et al., 1981)。此外, 据研究, 气藏中生物气碳同位素特征与海相沉积物中生物气碳同位素特征可以类比 (Schoell, 1988)。据此推断, 柴达木盆地生物气的形成可能以 CO_2 还原途径为主。

据模拟实验结果 (钱贻伯等, 1998), 乙酸发酵作用过程中形成的生物气 $\delta^{13}\text{C}_1$ 随产气时间和温度的增加变轻, 而柴达木盆地生物气 $\delta^{13}\text{C}_1$ 却随深度 (相当于时间和温度) 增加而变重 (图2), 由此推测, 乙酸

图2 柴达木盆地第四系生物气 $\delta^{13}\text{C}_1$ 和 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ 与深度的关系图Fig. 2 Relation of $\delta^{13}\text{C}_1$ and $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ with the buried depth of the Quaternary biogenic gases in the Qaidam basin

发酵作用不是柴达木盆地生物气生成的主要途径，从而，也反证了 CO₂还原途径可能是柴达木盆地生物气生成的主要途径。

3.2.2 δ¹³C₁与 δ¹³C_{CO₂}的关系

由于形成途径不同，生物气中共生的 CH₄和 CO₂的分馏系数也存在差异。CO₂还原途径形成甲烷的碳同位素分馏系数 α_c > 1.055 [α_c = (δ¹³C_{CO₂} + 10³)/(δ¹³C₁ + 10³)], 而乙酸发酵途径生成的甲烷的碳同位素分馏系数 α_c < 1.055 (Whiticar et al., 1986; Whiticar, 1989)。经计算，柴达木盆地生物气 α_c 分布于 1.055~1.062 之间，平均 1.060，推测柴达木盆地生物气主要形成于 CO₂还原途径。

图 3 为柴达木盆地第四系生物气 δ¹³C₁与 δ¹³C_{CO₂}关系图。由图 3 可知，柴达木盆地绝大多数生物气样品点落在 CO₂还原途径范围内 (Whiticar et al., 1986; Whiticar, 1989)。此外，据研究 (Whiticar et al., 1986; Whiticar, 1989)，以乙酸发酵途径为主形成的生物气 δ¹³C₁大多重于 -60‰，平均 -58‰，而以 CO₂还原途径为主形成的生物气 δ¹³C₁一般轻于 -60‰，平均值为 -68‰。柴达木盆地生物气 δ¹³C₁分布于 -68.2‰~-61.8‰ 范围内，平均 -64.8‰，更接近以 CO₂还原途径为主形成的生物气 δ¹³C₁分布范围。

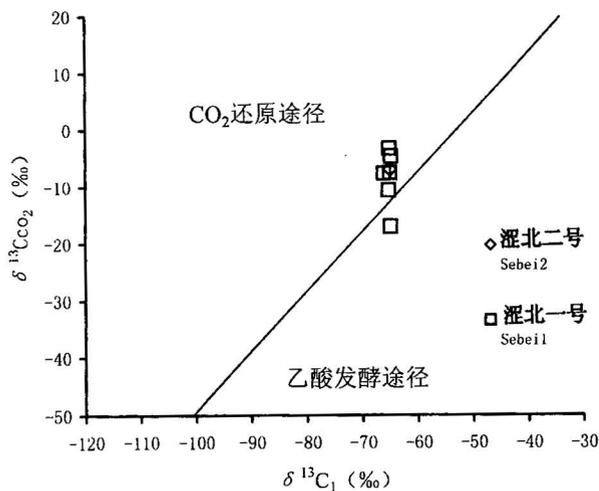


图 3 柴达木盆地第四系生物气 δ¹³C₁与 δ¹³C_{CO₂}关系图 (图中生物气不同形成途径的界线据 Whiticar et al., 1986; Whiticar, 1989)

Fig. 3 Relation of δ¹³C₁ with δ¹³C_{CO₂} of the Quaternary biogenic gases in the Qaidam basin (the boundaries of the biogenic gases formed by different pathways are drawn based on Whiticar et al., 1986; Whiticar, 1989)

3.2.3 δ¹³C₁与 δD 的关系

图 4 为柴达木盆地第四系生物气 δ¹³C₁与 δD 关系图。由图 4 可知，柴达木盆地生物气样品点位于 CO₂还原途径分区内 (Rice et al., 1981; Scheoll, 1980, 1988; Whiticar et al., 1986; Whiticar, 1989)。此外，据研究 (Whiticar et al., 1986)，CO₂还原途径形成的生物气的 δD 分布范围较窄，平均 -192‰，而以乙酸发酵途径为主形成的生物气 δD 非常轻，平均 -318‰。柴达木盆地生物气 δD 较重，分布于 -235‰~-222‰ 之间，平均 -230‰ (戴金星等, 1996)，更接近 CO₂还原途径形成的生物气 δD 的分布范围。据研究 (Scheoll, 1980)，生物气 δD 主要取决于地层水 δD，两者的关系为：δD_{CH₄} = δD_{H₂O} - 160(±10)‰。柴达木盆地第四系形成于咸水环境，其地层水盐度相应比较高，δD_{H₂O} 也比较重，因此，生物气 δD_{CH₄} 也较淡水环境生物气重，更接近于海相环境生物气的 δD_{CH₄} 分布范围。

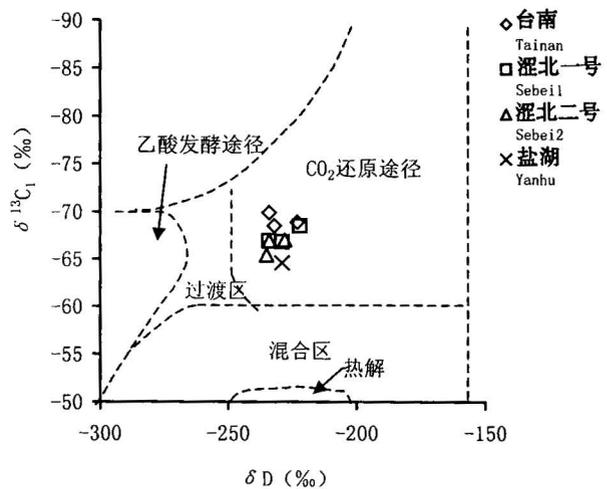


图 4 柴达木盆地第四系生物气 δ¹³C₁与 δD 关系图 (图中数据据戴金星等, 1996, 生物气不同形成途径的界线据 Whiticar et al., 1986; Whiticar, 1989)

Fig. 4 Relation of δ¹³C₁ with δD of the Quaternary biogenic gases in the Qaidam basin (the data are from Dai Jinxing et al., 1986; the boundaries of the biogenic gases formed by different pathways in Fig. 4 are drawn based on Whiticar et al., 1986; Whiticar, 1989)

3.2.4 生物气的形成条件

Whiticar 等 (Whiticar et al., 1986; Whiticar, 1989) 认为生物气形成途径与沉积环境有关，即乙酸发酵途径主要与陆相环境有关，而海相环境主要进行 CO₂还原途径的生气作用。然而，由于自然界中发

现了许多与上述观点不符的实例,众多学者对上述观点提出了异议(Martens et al., 1986; Coleman et al., 1988; Schoell, 1988; 戴金星等, 1993; 戚厚发等, 1997)。Jenden 等(1986)和 Schoell(1988)总结认为生物气形成途径与沉积环境关系并不密切,而主要与沉积物的古温度和埋深(年代效应)有关,即气候温暖条件下,埋藏浅(年代较轻)的沉积物更有利于乙酸发酵途径生气作用;而气候较寒冷条件下,埋藏深(年代较老)的沉积物更有利于 CO₂还原途径成气作用。综合现有生物气形成途径资料,笔者认为这一观点比较合理。

柴达木盆地第四纪气温较低,年平均温度在3~10℃之间;以干旱气候条件为主,水体含盐度较高;沉积速率很高,平均约1mm/a,致使区域最大沉积厚度在3000m以上;沉积水体中硫酸盐含量较高,硫酸根含量为0.2%~0.25%,地层水中一般为20~60mg/L,最高可达5569mg/L^{①②}。这些条件有效地抑制了甲烷菌的活动,使沉积物达到一定埋深时甲烷菌才能大量繁殖并生成生物气(戚厚发等, 1997)。因此,柴达木盆地第四系较低的古温度和较大的埋深有利于 CO₂还原途径成气作用的进行。据研究(Jenden et al., 1986; Coleman et al., 1988),迄今所有乙酸发酵成因的甲烷均形成于具有淡水有机碎屑注入的年轻沉积物中,而这些甲烷主要散失到大气中了,不可能保存在深部地层中。据统计(Schoell, 1980, 1988; Rice, 1992; Noble et al., 1998),几乎所有气藏中的生物气都具有 CO₂还原途径成气的碳同位素特征。此外,据戚厚发等(1997)对柴达木盆地第四系剖面细菌种类的观察结果,产甲烷菌均主要以 H₂、CO₂作为代谢能源的碳源,未观察到利用乙酸的产甲烷细菌,这与本文的认识基本相一致。

需要指出的是,尽管本文强调柴达木盆地生物气以 CO₂还原途径成气作用为主,但并不排斥乙酸发酵途径生气作用的存在。事实上,自然界中生物气的形成总是上述两种生气途径并存,只不过在一定的沉积环境中以某一生气途径为主而已(Whiticar et al., 1986)。

3.3 运聚方式

目前有关柴达木盆地三湖地区生物气的运聚方式,即天然气是以垂向运聚为主,还是以水平运聚为主,尚存在不同认识。本文的天然气地球化学资料为探讨这一问题提供了新的论据。

如前所述,涩北一号和涩北二号不同气层组生物气 δ¹³C₁与深度之间呈正相关关系,这可能是其

CO₂还原途径成气的必然结果。这种关系在许多生物气田和沉积剖面 CO₂还原途径形成的生物气中都能见到,如美国科罗拉多和堪萨斯州的生物气田(Rice et al., 1981)、意大利波河谷地拉文纳地区气田(Mattavelli et al., 1983)、美国伊利诺斯冰积物剖面(Coleman et al., 1988)和现代深海钻井剖面(Rice et al., 1981; Galimov et al., 1983, 1985)。笔者认为这种关系可能是生物气未发生过明显的垂向运移和混合作用的标志。涩北一号和涩北二号不同气层组生物气 δ¹³C₁与深度之间的正相关关系(图2)可能说明各气层组生物气为自生自储的,或生物气在生气凹陷不同深度的气源岩中形成以后,沿疏导层直接运移到气藏不同深度的储层中,基本未发生明显的垂向运移或不同气层组天然气之间的混合。柴达木盆地第四系天然气地质条件、水文地质条件和资源量计算结果表明,天然气水平运聚成藏是主要的。柴达木盆地三湖地区第四系浅湖相席状砂体连续性较好,不同砂层组之间都为较厚的泥岩盖层隔开;低角度背斜圈闭连续完整,基本未受到构造运动的影响;涩北一号和涩北二号气田位于生气中心——中央凹陷区上倾方向的北斜坡上,是天然气运移的必经之地^{①②},这些地质条件都有利于天然气的水平运移。据研究(徐自远, 2002, 个人通讯),柴达木盆地南缘祁连山前的南斜坡区是地下水的补给区,中央凹陷区是地下水溶解生物气的区域,而北斜坡区是地下水的泄水区,也是天然气脱溶区(图1),因此,天然气的运移方向与地下水的运移方向相一致。此外,据天然气资源量计算(徐自远, 2002, 个人通讯),涩北一号和涩北二号气田分布区内的天然气资源量不足以形成这两个气田现今的天然气储量,需要大量水平运移的天然气作为补充。

4 结语

柴达木盆地第四系天然气的生物气属性基本已得到认可,但生物气的形成有乙酸发酵和 CO₂还原两种途径,它们的成气机制和形成条件有较大差异(Whiticar et al., 1986; Whiticar, 1989; Reiner et al., 1996; 戚厚发等, 1997)。尤其是像柴达木盆地这样形成于湖相咸水环境的生物气的形成途径,国内

① 青海石油管理局. 1989. 柴达木盆地东部生物气的形成条件及资源评价.

② 青海石油管理局. 1991. 柴达木盆地东部第四系生物气成藏条件与勘探目标选择.

外都研究较少。因此,生物气形成途径探讨是其成因研究的深入。此外,生物气模拟实验常被用于探讨生物气的形成机制和计算资源量,但不同途径形成生物气模拟的实验条件、方法和步骤不同,由此得到的生气量也不同,因此,生气途径研究是柴达木盆地生物气模拟实验研究和资源评价的基础。天然气的运聚方式对于天然气运聚模式建立,天然气资源与勘探远景评价,天然气勘探层系和区块选择具有重要意义。本文的研究成果表明:

(1)涩北一号和涩北二号气田生物气 $\delta^{13}\text{C}_1$ 和 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ 与深度呈正相关关系,可能说明生物气主要是由 CO_2 还原途径形成的。

(2)生物气 $\delta^{13}\text{C}_1$ 、 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ 和 δD 分布与 CO_2 还原途径形成的生物气分布范围接近。这些数据在 $\delta^{13}\text{C}_1$ 与 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ 和 $\delta^{13}\text{C}_1$ 与 δD 成因图解中主要位于 CO_2 还原途径成气范围内。生物气 CO_2 和 CH_4 之间的碳同位素分馏系数 $\alpha_c > 1.055$, 具有 CO_2 还原途径成气的特征。

(3)柴达木盆地第四系古气候干旱,古温度较低,沉积速率较高,水体中硫酸盐含量也较高,从而抑制了甲烷菌的活动与繁殖,使得生物气的大量形成只有在埋深较大时才能实现,因而,有利于 CO_2 还原途径成气作用的进行。

(4)涩北一号和涩北二号气田不同气层组生物气 $\delta^{13}\text{C}_1$ 与深度呈正相关,可能说明生物气形成以后主要沿疏导层水平运移至气藏中,基本无明显的垂向运移和混合作用。

在野外工作和样品采集期间得到了中国石油天然气总公司青海油田分公司勘探开发研究院的大力支持与帮助,样品测试在气体地球化学国家重点实验室进行,在此深表谢意。

参 考 文 献

- 陈英,戴金星,戚厚发. 1994. 关于生物气研究中几个理论及方法问题的研究. 石油实验地质, 16(3): 209~219.
- 戴金星,裴锡古,戚厚发. 1992. 中国天然气地质学(卷一). 北京:石油工业出版社, 35~87.
- 戴金星,陈英. 1993. 中国生物气中烷烃组分的碳同位素特征及其鉴别标志. 中国科学(B辑), 23(3): 303~309.
- 戴金星,裴锡古,戚厚发. 1996. 中国天然气地质学(卷二). 北京:石油工业出版社, 82~205.
- 顾树松,周翥虹. 1993. 柴达木盆地东部第四系天然气地化特征与分类. 天然气工业, 13(2): 1~6.
- 戚厚发,关德师,钱贻伯. 1997. 中国生物气成藏条件. 北京:石油工业出版社, 75~107.
- 钱贻伯,连莉文,陈文正,戚厚发,关德师. 1998. 生物气形成过程中 CH_4 碳同位素变化规律的研究. 石油学报, 19(1): 29~33.

- 徐永昌. 1994. 天然气成因理论及其应用. 北京:科学出版社, 98~99.
- 周翥虹,周瑞年,管志强. 1994. 柴达木盆地东部第四系气源岩地化特征与生物气前景. 石油勘探与开发, 21(2): 30~36.

References

- Chen Ying, Dai Jinxing, Qi Houfa. 1994. On some theoretical and methodological topics of biogenic gas studies. *Experimental Petroleum Geology*, 16(3): 209~219 (in Chinese with English abstract).
- Coleman D D, Liu Chaoli, Kerry M R. 1988. Microbial methane in the shallow Paleozoic sediments and glacial deposits of Illinois, U. S. A. *Chemical Geology*, 71: 23~40.
- Dai Jinxing, Pei Xigu, Qi Houfa. 1992. *Natural gas geology in China* (Vol. 1). Beijing: Petroleum Industry Press, 35~87 (in Chinese).
- Dai Jinxing, Chen Ying. 1993. Carbon isotopic characteristics and identification indicators of the alkane compositions in biogenic gases in China. *Science in China (Series B)*, 23(3): 303~309 (in Chinese).
- Dai Jinxing, Pei Xigu, Qi Houfa. 1996. *Natural gas geology in China* (Vol. 2). Beijing: Petroleum Industry Press, 82~205 (in Chinese).
- Galimov E M, Kvenvolden K A. 1983. Concentrations and carbon isotopic compositions of CH_4 and CO_2 in gas from sediments of the Blake Outer Ridge. *Deep Sea Drilling Project 76, Initial Reports of the DSDP*, 76: 403~407.
- Galimov E M, Shabayeva I Y. 1985. Carbon isotopic compositions of CH_4 and CO_2 in the sediments. *Intern. Geol. Rev.*, 27: 651~658.
- Gu Shusong, Zhou Chuhong. 1993. Geochemical characteristics and classification of the Quaternary biogenic gases in the Qaidam basin. *Natural Gas Industry*, 13(2): 1~6 (in Chinese).
- Jenden P D, Kaplan I R. 1986. Comparison of microbial gases from the Middle America Trench and Scripps Submarine Canyon: Implications for the origin of natural gas. *Applied Geochemistry*, 1: 631~646.
- Martens C S, Blair N E, Green C D, Des Marais D J. 1986. Seasonal variations in the stable carbon isotopic signature of biogenic methane in a coastal sediment. *Science*, 233: 1300~1303.
- Mattavelli L, Ricchiuto T, Grignani D, Schoell M. 1983. Geochemistry and habitat of natural gases in the Po Basin, Northern Italy. *AAPG Bull.*, 67: 2239~2254.
- Noble R A, Henk F H Jr. 1998. Hydrocarbon charge of a bacterial gas field by prolonged methanogenesis: an example from the East Java Sea, Indonesia. *Org. Geochem.*, 29(1~3): 301~314.
- Qi Houfa, Guan Deshi, Qian Yibo. 1997. Pool-forming conditions of biogenic gases in China. Beijing: Petroleum Industry Press, 75~107 (in Chinese).
- Qian Yibo, Lian Liwen, Chen Wenzheng, Qi Houfa, Guan Deshi. 1998. Study on regularity of the carbon isotopic alteration of the CH_4 during the formation of biogenic gas. *Acta Petrolei Sinica*, 19(1): 29~33 (in Chinese with English abstract).
- Reiner B, Horst-Dieter P, Manfred S, Michael T. 1996. Carbon isotope fractionation during bacterial methanogenesis by CO_2 reduction. *Org. Geochem.*, 25(3/4): 255~262.
- Rice D D, Claypool G E. 1981. Generation, accumulation, resource potential of biogenic gas. *AAPG Bulletin*, 65: 5~25.

- Rice D D. 1992. Controls, habitat and resource potential of ancient bacterial gas. In: Vially R, ed. *Bacterial Gas*. Editions Technip, Paris, 91~118.
- Schoell M. 1980. The hydrogen and carbon isotopic composition of methane from natural gases of various origins. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 44: 649~662.
- Schoell M. 1982. Stable isotope analyses on interstitial gases in Quaternary sediments from the Gulf of California. *DS-DP-IPOD Leg 64, Initial Reports of the DSDP*, 64(2): 815~817.
- Schoell M. 1988. Multiple origins of methane in the earth. *Chemical Geology*, 71: 1~10.
- Whiticar M J, Faber E, Schoell M. 1986. Biogenic methane formation in marine and freshwater environments: CO₂ reduction vs. acetate fermentation-isotope evidence. *AAPG Bulletin*, 50: 693~709.
- Whiticar M. 1989. A geochemical perspective of natural gas and atmospheric methane. *Organic Geochemistry*, 16(1~3): 531~547.
- Xu Yongchang. 1994. Theory and application of natural gas origin. Beijing: Science Press, 98~99 (in Chinese).
- Zhou Chuhong, Zhou Ruinian, Guan Zhiqiang. 1994. Biogenic gas prospect and geochemical characteristics of the Quaternary gas source rocks in the east part of the Qaidam basin. *Petroleum Exploration and Development*, 21(2): 30~36 (in Chinese with English abstract).

Metabolic Pathway of the Quaternary Biogenic Gases and Their Migration and Accumulation in the Qaidam Basin, China

ZHANG Xiaobao¹⁾, XU Ziyuan²⁾, DUAN Yi¹⁾, MA Liyuan¹⁾, MENG Zifang¹⁾,
ZHOu Shixin¹⁾, HE Peng²⁾

1) State Key Laboratory of Geochemistry, Lanzhou Institute of Geology, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou, 730000

2) Reserch Institute of Petroleum Exploration and Development, Qinghai Petroleum Cimpany, CNPC, Dunhuang, 736202

Abstract

The Quaternary biogenic gas province in the Taijnar Lake—Suli Lake—Dabsan Lake area (Sanhu area, means three lakes area), Qaidam basin is the largest biogenic gas province in China. 21 gas samples were collected from different gas-pay beds of the Sebei 1 gas field and the Sebei 2 gas field. The chemical composition and carbon isotope of them were measured, and the microbial pathway, migration and accumulation, and significance of the biogenic gases were emphatically investigated. CH₄ and CO₂ of the biogenic gases are enriched in ¹³C with increasing depth, indicating that they are CO₂ reduction-derived gases. The δ¹³C₁, δ¹³C_{CO₂} and δD values of the biogenic gases approximate the range of the corresponding values of the gases formed by the CO₂ reduction pathway. The values fall in the field of CO₂ reduction pathway on genetic diagrams. The fractionation coefficients (α_c) of the CH₄ and CO₂ of the biogenic gases are more than 1.055, characteristic of the CO₂ reduction pathway. During the Quaternary due to the dry climate, low temperature, high sedimentary rate and a high content of sulfate methane bacteria could not propagate until sediments are buried in deeper layers. These conditions benefit the CO₂ reduction pathway. The distribution of δ¹³C₁ of the biogenic gases in the Sebei 1 and the Sebei 2 gas fields probably shows that the gases migrated horizontally into gas pools along leading layers rather than vertically. This research is of important value for further discussing the origin and formation conditions of biogenic gases, determining the method and conditions of biogenic gas simulation, accessing biogenic gas resource yield, establishing a pool-forming model and selecting targets of natural gas exploration.

Key words: biogenic gas; CO₂ reduction pathway; migration and accumulation; Qaidam basin